



TITLE:

<大学の研究・動向> 高温超伝導と ジョセフソン効果、強相関電子材 料とその応用

AUTHOR(S):

鈴木, 実; 掛谷, 一弘; 菅野, 未知央; 山田, 義春

CITATION:

鈴木, 実 ...[et al]. <大学の研究・動向> 高温超伝導とジョセフソン効果、強相関電子材料とその応用. Cue 2009, 22: 3-8

ISSUE DATE:

2009-09

URL:

<https://doi.org/10.14989/108656>

RIGHT:

大学の研究・動向

高温超伝導とジョセフソン効果、強相関電子材料とその応用

工学研究科 電子工学専攻 集積機能工学講座

教授 鈴木 実

准教授 掛谷 一弘

助教 菅野 未知央

助教 山田 義春

1. はじめに

新しい材料の発見が、新しい技術の創製と発展に繋がってきたのはこれまでの歴史の示すところです。ここ 10 年から 20 年にかけて発見されて、顕著な物性を示す材料に、強相関電子材料と呼ばれる一連の物質があります。顕著な物性とは、高温超伝導あるいは巨大磁気抵抗効果などです。高温超伝導では、135K という従来では考えられないくらいの高温で超伝導が発現します。高温超伝導をはじめとして、なぜこのような顕著な物性が発現するのか、その理由は今でもまだ十分理解されていません。そういう意味で驚くべき物性です。もっと顕著な物性、たとえば室温超伝導や、あるいは全く新しい物性が、この強相関電子材料の中からまだまだ発見される可能性は誰も否定できません。

強相関電子材料とは、Cu や Mn など、3d 遷移金属や他の不飽和核を有する元素の酸化物材料です。従来の認識では、このような酸化物は一般に絶縁体であり、透明電極やマグネタイトなど、ごく一部の酸化物でしか導電性の物質はありませんでした。20 世紀が終わりに近づいたころ、超新星の爆発を初めとして、驚異的な発見や発明が相次ぎました。その一つが高温超伝導の発見であり、巨大磁気抵抗効果の発見だったのです。

このような高温超伝導を、あるいは巨大磁気抵抗効果をエレクトロニクスに応用して、これまでと同じ超伝導の機能が、より高い温度でより高い性能で実現できるようにしたい、ということをわれわれは考えています。それと同時に、これまでの超伝導では実現できないような新しい機能を、このような強相関電子材料に見出したいと考えています。また、このような驚くべき顕著な高温超伝導が、なぜ発現するのかという理由も解き明かしたいと考えています。

2. 高温超伝導体の異常なジョセフソン効果

超伝導のエレクトロニクス応用ではジョセフソン効果が重要な役割を担います。ジョセフソン効果は、2つの超伝導体を、電子がトンネルするほど薄い絶縁膜で結合した接合で現れます。ジョセフソン効果は、巨視的量子効果である超伝導の位相を電気信号に変換する役割をします。半導体と同じように、超伝導エレクトロニクス回路の高速化には微細化が必要です。たとえば、100 GHz 以上の高速性を実現するにはサブミクロン配線技術が必要になります。その場合、ジョセフソン接合も同じように微小化され、かつジョセフソン電流はある一定の大きさが必要であるために、回路の微細化には最大ジョセフソン電流密度の増大が必要です。

しかし、高温超伝導体ではこの最大ジョセフソン電流密度 J_c を大きくすることは、実は非常に困難で

す。最初、このことは技術的な問題と考えられていました。つまり、高温超伝導体が酸化物であり、酸化物で極めて薄い絶縁トンネル層を形成するのが技術的に困難であるためと理解されていたのです。ところが、次に述べる固有ジョセフソン接合では、接合が理想的であり、理想的な特性が実現されているはずであるにもかかわらず、同じように最大ジョセフソン電流密度が小さいことがわかったのです。つまり、最大ジョセフソン電流密度が小さいのは技術上の問題だけではなく、高温超伝導に付随するもっと本質的な問題であることが明らかになったのです。

3. 固有ジョセフソン接合

ビスマス系高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ （以下 Bi2212）では、図 1 に示すように、結晶構造が層状構造をしており、0.3 nm の超伝導層と 1.2 nm の絶縁層が交互に積層されています。つまり、結晶構造そのものが積層されたトンネル型ジョセフソン接合になっています。このようなジョセフソン接合はイントリンシックジョセフソン接合（intrinsic Josephson junctions 略して IJJs）あるいは固有ジョセフソン接合と呼ばれています。固有ジョセフソン接合では、トンネル層が結晶構造そのものであるため、界面が清浄平坦で理想的なトンネル型ジョセフソン接合とみなすことができます。このような特徴をもった固有ジョセフソン接合は、応用のみならず高温超伝導の真の性質を知る上で非常に重要なプローブにもなります。

この固有ジョセフソン接合を用いて、その最大ジョセフソン電流密度を測定したところ、やはり超伝導ギャップ Δ の大きさから期待される J_c の値よりも観察される J_c の値ははるかに小さいということがわかりました。つまり、高温超伝導体の J_c が小さいという事実は、トンネル接合を作るという技術上の問題ではなく、高温超伝導体に付随する本質的な問題であることを意味しています。このようにして高温超伝導体ではジョセフソン効果が異常であることが明らかになりました。高温超伝導の異常なジョセフソン効果は、人工的に作られたジョセフソン接合でもいろいろな形で現れていました。しかし、高温超伝導体ではなぜこのような異常なジョセフソン効果が現れるのかその理由はわかっていませんでした。

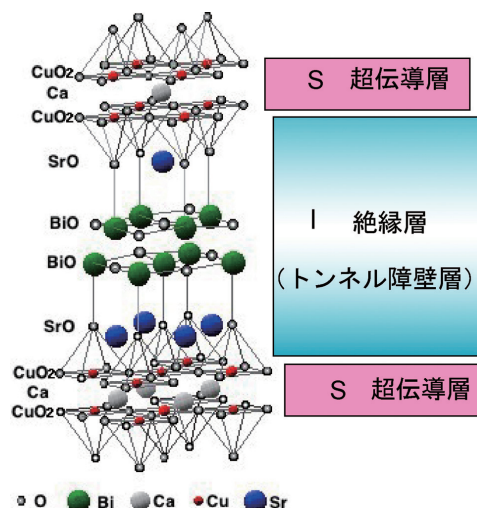


図 1 高温超伝導体 Bi2212 の結晶構造すなわち固有ジョセフソン接合。超伝導層と絶縁層が交互に積層されており、トンネル型のジョセフソン接合となっている。

3. 微細加工による固有ジョセフソン接合微小構造作製とその特性

固有ジョセフソン接合の特性は、結晶から数層取り出すことで初めて観察することができます。厚い結晶では数 1000 個の接合が直列になるため真の特性は観察できません。われわれはフォトリソグラフとアルゴンイオンミリングを用いて Bi2212 単結晶の表面を微細加工し、固有ジョセフソン接合を数層・10 数層取り出すことによって、ジョセフソン電流と準粒子電流を同時に観察することに初めて成功しました [1] [2]。

最初は 40 層ほどでしたが、それが 20 層、10 層、5 層と少なくすることができるようになり、最近では 2 層や 1 層の固有ジョセフソン接合の微小構造を作ることができるようになりました。2 層の 2 μm 角の固有ジョセフソン接合微小メサ構造の電流電圧特性を図 2 に示します。図 2 の上の写真で、中央の垂直の部分がジョセフソン電流で 2 つの接合ともに 0 電圧状態です。その両側の斜めの短い線の部分（電

圧分枝) が1個の接合が電圧状態になっています。その外側の丸い長い部分が2個とも電圧状態を示しています。図2の下の写真は、電圧分枝が電流を増加しても2本しか現れないこと、すなわちこの微小メサ構造がたった2個の固有ジョセフソン接合から構成されていることを示しています。このような微小構造

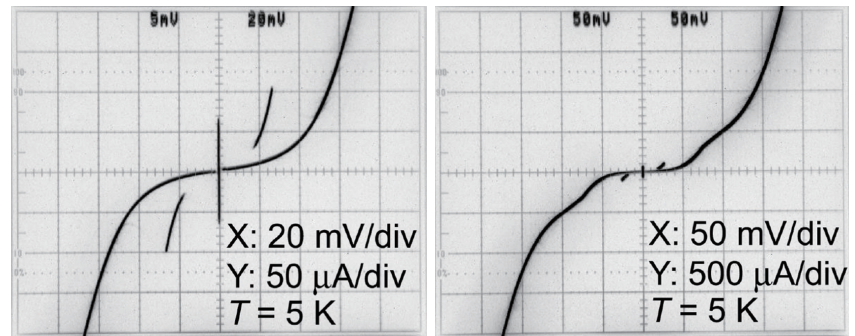


図2 2層の固有ジョセフソン接合からなる微小メサ構造の電流電圧特性。

図3と図4は固有ジョセフソン接合の微小構造の模式図です。図3の微小メサ構造は単結晶の表面に形成するために層数の制御が比較的容易ですが、3端子構造のため接触抵抗の低減と超伝導近接効果の影響を受けてしまいます。これまでの実験はほとんどこの微小メサ構造を用いてなされました。

一方、図4の微小クランク構造は、4端子構造であるため、接触抵抗をあまり気にしなくとも良いのですが、作製方法が複雑で難しく、また機械的強度が弱いこと、それから固有ジョセフソン接合の層数を数層に制御することがかなり困難です。われわれはこれまで $5\mu\text{m}$ 角で5層(厚さ 7.5 nm)の微小クランク構造の作製に成功しましたが、まだ再現性は良くありません。

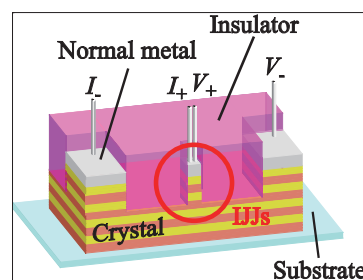


図3 微小メサ構造

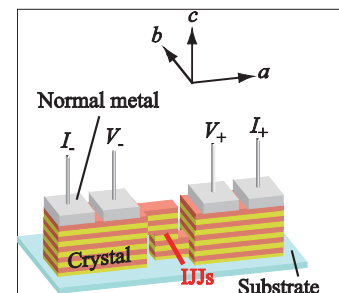


図4 微小クランク構造

3. 短パルストンネル分光と不均一超伝導状態、および擬ギャップ

固有ジョセフソン接合は、本来、結晶構造そのものであるということから、高温超伝導体の結晶のすべてにわたって存在していることになります。つまり、固有ジョセフソン接合の特性は、高温超伝導体のバルクの特性を反映しています。したがって、固有ジョセフソン接合を用いてトンネル分光を行えば、高温超伝導体の、表面状態ではない、真の性質がわかります。われわれはこの点に注目してトンネル分光実験を行いました [2]。この実験では、薄い超伝導層に電圧状態で電流を流すために発熱が顕著です。電流注入による自己発熱と言われます。この自己発熱が大きいと測定が不正確になりますから、自己発熱を極力抑制する必要があります。われわれは、大きさ $5\text{--}10\mu\text{m}$ 角、厚さ $7\text{--}15\text{ nm}$ 、つまり固有ジョセフソン接合で数層という微小なメサ構造を単結晶の劈開表面に作製し、かつトンネル特性を短パルスを使用し 60 ns の時間スケールで測定して、自己発熱を抑えました [3]。こ

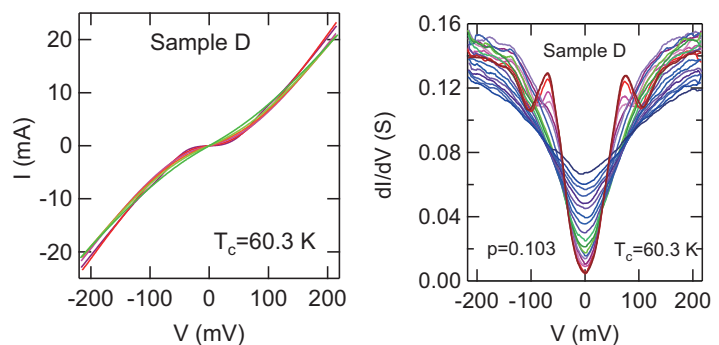


図5 短パルス層間トンネル分光の一例。10Kから200Kまで。

の実験技術はまだ他の研究機関の追従を許さないところです。

短パルス層間トンネル分光結果の例を図5に示します。図5の低温におけるピークの間隔から超伝導ギャップの大きさ Δ を知ることができます。また、図5の I - V 特性の $V > 2\Delta/e$ の領域における抵抗から R_N を知ることができます。

一般に、最大ジョセフソン電流密度 J_c の大きさは Ambegaokar-Baratoff (AB) の理論により、

$$J_c = \frac{\pi\Delta}{2eR_N} \tanh \frac{\Delta}{2k_B T} \equiv \frac{\pi\Delta}{2eR_N} \quad (1)$$

と表すことができます。つまり、トンネル抵抗 R_N と Δ を知れば理論的な最大ジョセフソン電流密度の大きさ J_c を知ることができることになります。 J_c の値は図2の I - V 特性の観察で知ることができます。つまり、理想的な接合を用いて、高温超伝導の J_c を理論と実験で比較することができることになります。このような検討を行った結果以下のようなことがわかりました。

高温超伝導は、反強磁性 Mott 絶縁体にホール（正孔）をドーピング（注入）すると発現します。ドーピングにしたがって、転移温度 T_c は高くなり、最適ドーピング量で最高値に達しますが、それ以上注入すると今度は T_c は低くなり、あるところで消失します。最適ドーピング量よりも少ないドーピング領域（不足ドーピング領域）では、 J_c が理論よりも2桁かそれ以上少なくなることがわかりました。トンネル障壁の影響は R_N に取り込まれていますからそれ以外の要因でしか説明できません。結局、これを説明するためには超伝導性の空間的な不均一性を考えなければいけないということがわかりました。空間といっても実空間と量子力学で定義される波数空間の2種類があります。本質的には、波数空間で超伝導に寄与する遍歴電子が偏在していることを示しています。高温超伝導では、ドーピング量の増加に従って、偏在の仕方が変化するために J_c の著しいドーピング量依存性が現れたと言えます。一方、高温超伝導体ではホールのドーピングは価数の異なる原子を置換して、いわゆる化学的に行いますから、微視的に見ると置換原子の周囲では電子状態の乱れがあります。この影響はキャリア数の少ない不足ドーピング領域で顕著になりますから、不足ドーピング領域では実空間における超伝導の不均一性が存在していると考えられます。高温超伝導体の超伝導状態はこのように理解できることがこの実験からわかったのです。これが異常なジョセフソン効果の原因と考えられます。

図5で、超伝導ピークの外側に幅広いピークが見えます。また温度が T_c より高くなっても（複数の青い線で示した）フェルミ準位（ $V=0$ ）付近にあたかも超伝導状態のようにギャップが残っています。これが擬ギャップと言われる現象です。擬ギャップの原因はまだ解明されていません。現状では、大きく2つの説に別れています。1つは、超伝導を担うクーパー対は T_c よりももっと高い温度から形成が始まっているが、空間的にコヒーレントにならないために超伝導になっていないだけで、温度が低くなると T_c でようやくほとんどのクーパー対がコヒーレントになり超伝導が発現する、というものです。もう1つは、超伝導と競合する別の秩序があり、条件が超伝導に有利になって電子状態が超伝導に支配されても、その残滓が現れている、という説です。われわれが短パルス層間トンネル分光で得た結果は後者の説を支持しています [4]。

4. 微小メサ構造と巨視的量子トンネル効果

将来の量子情報技術には集積化が容易な固体キュービットが使用されることになると考えられています。固体キュービットには種々の提案がありますが、それぞれにメリット、デメリットがあります。巨視的量子効果を示す超伝導キュービットの場合、集積化は容易と見られ、コヒーレンス時間の長時間化が課題になっています。

超伝導キュービットの1つ、位相キュービットはジョセフソン接合を用います。ジョセフソン接合の

ふるまいは、接合両側の位相差 ϕ で記述されます。 ϕ の運動方程式は単一振子と全く同じで、 $\cos \phi$ のポテンシャルの中を運動します。一方、振子の質量は接合の静電容量 C に対応します。したがって、 C が非常に小さい場合、 ϕ の状態は量子化されてエネルギーは離散化されます。位相キュービットはその量子化された準位のうち、下から 2 つの重ね合わせを利用します。

高温超伝導体の固有ジョセフソン接合を利用すると、位相キュービットの読み出しに使用する巨視的量子トンネル効果 (MQT) が従来よりもはるかに高温で発現する可能性があります。また、複数の固有ジョセフソン接合をあたかも 1 つのように動作させると、実効的に低温で動作させた場合と同様の効果をもたらします。このような効果のために、固有ジョセフソン接合を利用した位相キュービットではコヒーレンス時間が長くなる可能性があります。また、現状の超伝導キュービットの主たるデコヒーレンス要因は、ジョセフソン接合の品質と言われています。固有ジョセフソン接合の場合、接合は結晶構造そのものですから、デコヒーレンスを抑えてコヒーレンス時間が長くなる可能性が大いにあります。そこでわれわれはそうした可能性をめざして、固有ジョセフソン接合の MQT の研究を進めています。

図 6 は MQT 実験に使用した 2 層の固有ジョセフソン接合微小メサ構造素子の特長です。表面の J_c が電極と近接しているために大きさが小さくなっています。この接合のスイッチング確率分布 $P(I)$ は、Kramers の熱励起の理論によって次のように表されます。

$$P(I) = \tau^{-1}(I) \left(\frac{dI}{dt} \right)^{-1} \left(1 - \int_0^I P(u) du \right) \quad (2)$$

図 7 は実験結果と理論のフィットです。理論とのフィットにより実効的な温度、すなわち脱出温度 T_{esc} がわかります。図 8 は T_{esc} の環境温度依存性を示しています。1 K から 6 K までは T_{esc} と T が一致して、Kramers の熱励起理論で説明できることがわかります。6 K 以上と 1 K 以下で T_{esc} が実際の温度 T からずれてきます。6 K 以上では、散逸が大きくなり MQT とは別の理由で理論からずれてきます。一方、1 K 以下の理論からのずれは MQT によるものです。この場合に、0.4 K 以下で MQT が支配的になることがわかりました (0.4 K の実験は東大との共同研究) [5]。

6. おわりに

高温超伝導体のジョセフソン効果について述べているうちに紙数が尽きてしまいました。おまけに最後は駆け足になり、説明が不十分になってしまったと思っています。当研究室では、ここで述べたこと

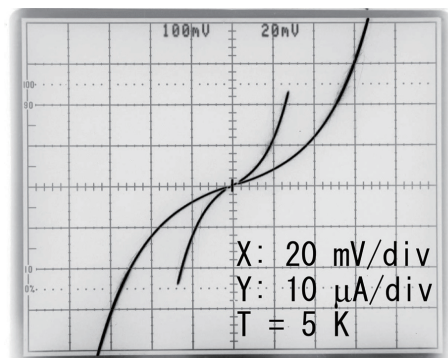


図 6 MQT 実験に使用した固有ジョセフソン接合微小メサ構造。2 層、2 μm 角。

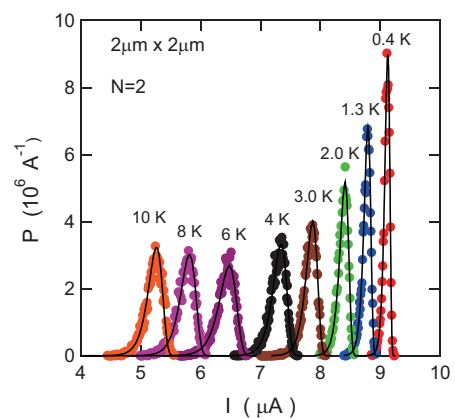


図 7 0.4 K から 10 K までの固有ジョセフソン接合のスイッチング電流確率分布

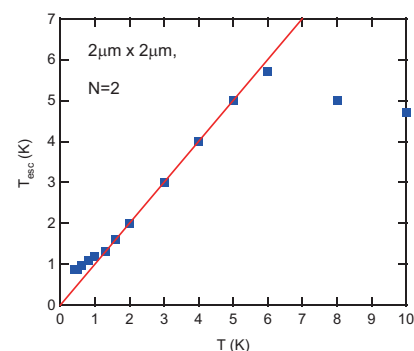


図 8 脱出温度 T_{esc} の環境温度依存性

以外にも、Mn 系巨大磁気抵抗材料や高温超伝導との相互作用の研究も進めています。両方とも、強電子相関材料で、これまでにない新しい現象や機能などが発見できることを期待しています。

参考文献

- [1] K. Tanabe, Y. Hidaka, S. Karimoto, and M. Suzuki, Phys. Rev. B 53, 9348(1996).
- [2] M. Suzuki, T. Watanabe, and A. Matsuda, Phys. Rev. Lett. 82, 5361(1999).
- [3] K. Anagawa, Y. Yamada, T. Shibauchi, M. Suzuki, and T. Watanabe, Appl. Phys. Lett. 83, 2381(2003).
- [4] M. Suzuki and T. Watanabe, Phys. Rev. Lett. 85, 4787(2000).
- [5] K. Ota, K. Hamada, R. Takemura, M. Ohmaki, T. Machi, K. Tanabe, M. Suzuki, A. Maeda, and H. Kitano, Phys Rev. B 79, 134505(2009).